

BEST AVAILABLE COPY

12.05.03

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類は下記の出願書類の謄本に相違ないことを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 4月 9日

出 願 番 号

Application Number:

PCT/JP02/03541

出 願 人

Applicant (s):

愛知製鋼株式会社

本蔵 義信

御手洗浩成

濱田 典彦

野口 健児

REC'D 27 JUN 2003

WIPO

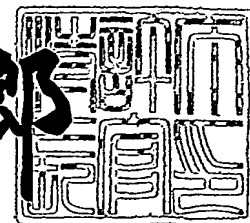
PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 6月 13日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田 信一郎



出証平 15-500131



特許協力条約に基づく国際出願

願 書

出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。

国際出願番号	受理官庁記入欄 PCT/JP02/03541
国際出願日	09.04.02
(受付印)	PCT International Application 日 本 国 特 許 庁

出願人又は代理人の登録番号
(希望する場合、最大12字) F-771-P

第I欄 発明の名称

複合希土類異方性ボンド磁石、複合希土類異方性
ボンド磁石用コンパウンドおよびそれらの製造方法

第II欄 出願人

☐ この欄に記載した者は、発明者でもある。

氏名(名称)及びあて名:(姓・名の順に記載;法人は公式の完全な名称を記載;あて名は郵便番号及び国名も記載)

愛知製鋼株式会社

AICHI STEEL CORPORATION

〒476-8666 日本国愛知県東海市荒尾町ワノ割1番地

1, Wano-wari, Arao-machi, Tokai-shi, Aichi-ken

476-8666 Japan

電話番号:

052-603-9251

ファクシミリ番号:

052-603-1862

加入電話番号:

出願人登録番号:

国籍(国名): 日本国 JAPAN

住所(国名): 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である:

☐ すべての指定国



米国を除くすべての指定国

☐ 米国のみ

☐ 追記欄に記載した指定国

第III欄 その他の出願人又は発明者

氏名(名称)及びあて名:(姓・名の順に記載;法人は公式の完全な名称を記載;あて名は郵便番号及び国名も記載)

本蔵 義信 HONKURA Yoshinobu

〒476-8666 日本国愛知県東海市荒尾町ワノ割1番地

愛知製鋼株式会社内

c/o AICHI STEEL CORPORATION

1, Wano-wari, Arao-machi, Tokai-shi, Aichi-ken

476-8666 Japan

この欄に記載した者は
次に該当する:

☐ 出願人のみである。

☒ 出願人及び発明者である。

☐ 発明者のみである。
(ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと)

出願人登録番号:

国籍(国名): 日本国 JAPAN

住所(国名): 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である:

☐ すべての指定国



米国を除くすべての指定国

☒ 米国のみ

☐ 追記欄に記載した指定国

☒ その他の出願人又は発明者が続業に記載されている。

第IV欄 代理人又は代表者、通知のあて名

次に記載された者は、国際機関において出願人のために行動する:

☒ 代理人

☐ 代表者

氏名(名称)及びあて名:(姓・名の順に記載;法人は公式の完全な名称を記載;あて名は郵便番号及び国名も記載)

弁理士 大川 宏 OHKAWA Hiroshi

〒450-0002 日本国愛知県名古屋市中村区名駅3丁目2番5号

2-5, Meieki 3-chome, Nakamura-ku, Nagoya-shi, Aichi-ken

450-0002 Japan

電話番号:

052-583-9720

ファクシミリ番号:

052-565-0518

加入電話番号:

代理人登録番号:

☐ 通知のためのあて名:代理人又は代表者が選任されておらず、上記枠内に特に通知が送付されるあて名を記載している場合は、レ印を付す。

この続き その他の出願人又は発明者

この続表を使用しないときは、この用紙を願書に含めないこと。

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

御手洗 浩成 MITARAI Hironari
〒476-8666 日本国愛知県東海市荒尾町ワノ割1番地
愛知製鋼株式会社内
c/o AICHI STEEL CORPORATION
1, Wano-wari, Arao-machi, Tokai-shi, Aichi-ken
476-8666 Japan

この欄に記載した者は
次に該当する：

☐ 出願人のみである。

☒ 出願人及び発明者である。

☐ 発明者のみである。
（ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと）

出願人登録番号：

国籍（国名）： 日本国 JAPAN

住所（国名）： 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である： ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☒ 米国のみ ☐ 追記欄に記載した指定国

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

濱田 典彦 HAMADA Norihiko
〒476-8666 日本国愛知県東海市荒尾町ワノ割1番地
愛知製鋼株式会社内
c/o AICHI STEEL CORPORATION
1, Wano-wari, Arao-machi, Tokai-shi, Aichi-ken
476-8666 Japan

この欄に記載した者は
次に該当する：

☐ 出願人のみである。

☒ 出願人及び発明者である。

☐ 発明者のみである。
（ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと）

出願人登録番号：

国籍（国名）： 日本国 JAPAN

住所（国名）： 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である： ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☒ 米国のみ ☐ 追記欄に記載した指定国

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

野口 健児 NOGUCHI Kenji
〒476-8666 日本国愛知県東海市荒尾町ワノ割1番地
愛知製鋼株式会社内
c/o AICHI STEEL CORPORATION
1, Wano-wari, Arao-machi, Tokai-shi, Aichi-ken
476-8666 Japan

この欄に記載した者は
次に該当する：

☐ 出願人のみである。

☒ 出願人及び発明者である。

☐ 発明者のみである。
（ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと）

出願人登録番号：

国籍（国名）： 日本国 JAPAN

住所（国名）： 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である： ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☒ 米国のみ ☐ 追記欄に記載した指定国

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

この欄に記載した者は
次に該当する：

☐ 出願人のみである。

☐ 出願人及び発明者である。

☐ 発明者のみである。
（ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと）

出願人登録番号：

国籍（国名）：

住所（国名）：

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である： ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☐ 米国のみ ☐ 追記欄に記載した指定国

☐ その他の出願人又は発明者が他の続表に記載されている。

欄 国の指定

(該当する□にレ印を付すこと：少なくとも1つの□にレ印を付すこと)。

の規定に基づき次の指定を行う。ほかの種類の保護又は取扱をいずれかの指定国（又はOAPI）で求める場合には追記欄に記載する。

広域特許

- ☐ **AP** **ARIPO**特許：GHガーナ Ghana, GMガンビア Gambia, KEケニア Kenya, LSレソト Lesotho, MWマラウイ Malawi, MZモザンビーク Mozambique, SDスーダン Sudan, SLシエラ・レオネ Sierra Leone, SZスワジランド Swaziland, TZタンザニア United Republic of Tanzania, UGウガンダ Uganda, ZWジンバブエ Zimbabwe, 及びハラレプロトコルと特許協力条約の締約国である他の国
- ☐ **EA** ユーラシア特許：AMアルメニア Armenia, AZアゼルバイジャン Azerbaijan, BYベラルーシ Belarus, KGキルギスタン Kyrgyzstan, KZカザフスタン Kazakhstan, MDモルドヴァ Republic of Moldova, RUロシア Russian Federation, TJタジキスタン Tajikistan, TMトルクメニスタン Turkmenistan, 及びユーラシア特許条約と特許協力条約の締約国である他の国
- ☐ **EP** ヨーロッパ特許：ATオーストリア Austria, BEベルギー Belgium, CH and LIスイス及びリヒテンシュタイン Switzerland and Liechtenstein, CYキプロス Cyprus, DEドイツ Germany, DKデンマーク Denmark, ESスペイン Spain, FIフィンランド Finland, FRフランス France, GB英国 United Kingdom, GRギリシャ Greece, IEアイルランド Ireland, ITイタリア Italy, LUルクセンブルグ Luxembourg, MCモナコ Monaco, NLオランダ Netherlands, PTポルトガル Portugal, SEスウェーデン Sweden, TRトルコ Turkey, 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国である他の国
- ☐ **OA** **OAPI**特許：BFブルキナ・ファソ Burkina Faso, BJベナン Benin, CF中央アフリカ Central African Republic, CGコンゴ Congo, CIコートジボワール Côte d'Ivoire, CMカメルーン Cameroon, GAガボン Gabon, GNギニア Guinea, GWギニア・ビサウ Guinea-Bissau, MLマリ Mali, MRモーリタニア Mauritania, NEニジェール Niger, SNセネガル Senegal, TDチャド Chad, TGトーゴ Togo, 及びアフリカ知的所有権機構のメンバー国であり特許協力条約の締約国である他の国（他の種類の保護又は取り扱いを求める場合には点線の上に記載する）

国内特許（他の種類の保護又は取り扱いを求める場合には点線の上に記載する）

- | | | |
|--|---|---|
| <input type="checkbox"/> AE アラブ首長国連邦
United Arab Emirates | <input type="checkbox"/> GD グレナダ Grenada | <input type="checkbox"/> MW マラウイ Malawi |
| <input type="checkbox"/> AG アンティグア・バーブダ
Antigua and Barbuda | <input type="checkbox"/> GE グルジア Georgia | <input type="checkbox"/> MX メキシコ Mexico |
| <input type="checkbox"/> AL アルバニア Albania | <input type="checkbox"/> GH ガーナ Ghana | <input type="checkbox"/> MZ モザンビーク Mozambique |
| <input type="checkbox"/> AM アルメニア Armenia | <input type="checkbox"/> GM ガンビア Gambia | <input type="checkbox"/> NO ノルウェー Norway |
| <input type="checkbox"/> AT オーストリア Austria | <input type="checkbox"/> HR クロアチア Croatia | <input type="checkbox"/> NZ ニュー・ジーランド New Zealand |
| <input type="checkbox"/> AU オーストラリア Australia | <input type="checkbox"/> HU ハンガリー Hungary | <input type="checkbox"/> PL ポーランド Poland |
| <input type="checkbox"/> AZ アゼルバイジャン Azerbaijan | <input type="checkbox"/> ID インドネシア Indonesia | <input type="checkbox"/> PT ポルトガル Portugal |
| <input type="checkbox"/> BA ボスニア・ヘルツェゴヴィナ Bosnia and Herzegovina | <input type="checkbox"/> IL イスラエル Israel | <input type="checkbox"/> RO ルーマニア Romania |
| <input type="checkbox"/> B バルバドス Barbados | <input type="checkbox"/> IN インド India | <input type="checkbox"/> RU ロシア Russian Federation |
| <input type="checkbox"/> B ブルガリア Bulgaria | <input type="checkbox"/> IS アイスランド Iceland | <input type="checkbox"/> SD スーダン Sudan |
| <input type="checkbox"/> B ブラジル Brazil | <input type="checkbox"/> JP 日本 Japan | <input type="checkbox"/> SE スウェーデン Sweden |
| <input type="checkbox"/> BY ベラルーシ Belarus | <input type="checkbox"/> KE ケニア Kenya | <input type="checkbox"/> SG シンガポール Singapore |
| <input type="checkbox"/> BZ ベリーズ Belize | <input type="checkbox"/> KG キルギスタン Kyrgyzstan | <input type="checkbox"/> SI スロヴェニア Slovenia |
| <input type="checkbox"/> CA カナダ Canada | <input type="checkbox"/> KP 北朝鮮
Democratic People's Republic of Korea | <input type="checkbox"/> SK スロヴァキア Slovakia |
| <input type="checkbox"/> CH and LI
スイス及びリヒテンシュタイン
Switzerland and Liechtenstein | <input type="checkbox"/> KR 韓国 Republic of Korea | <input type="checkbox"/> SL シエラ・レオネ Sierra Leone |
| <input type="checkbox"/> CN 中国 China | <input type="checkbox"/> KZ カザフスタン Kazakhstan | <input type="checkbox"/> TJ タジキスタン Tajikistan |
| <input type="checkbox"/> CO コロンビア Colombia | <input type="checkbox"/> LC セント・ルシア Saint Lucia | <input type="checkbox"/> TM トルクメニスタン Turkmenistan |
| <input type="checkbox"/> CR コスタリカ Costa Rica | <input type="checkbox"/> LK スリ・ランカ Sri Lanka | <input type="checkbox"/> TR トルコ Turkey |
| <input type="checkbox"/> CU キューバ Cuba | <input type="checkbox"/> LR リベリア Liberia | <input type="checkbox"/> TT トリニダード・トバゴ
Trinidad and Tobago |
| <input type="checkbox"/> CZ チェコ Czech Republic | <input type="checkbox"/> LS レソト Lesotho | <input type="checkbox"/> TZ タンザニア
United Republic of Tanzania |
| <input type="checkbox"/> DE ドイツ Germany | <input type="checkbox"/> LT リトアニア Lithuania | <input type="checkbox"/> UA ウクライナ Ukraine |
| <input type="checkbox"/> DK デンマーク Denmark | <input type="checkbox"/> LU ルルクセンブルグ Luxembourg | <input type="checkbox"/> UG ウガンダ Uganda |
| <input type="checkbox"/> DM ドミニカ Dominica | <input type="checkbox"/> LV ラトヴィア Latvia | <input type="checkbox"/> US 米国 United States of America |
| <input type="checkbox"/> DZ アルジェリア Algeria | <input type="checkbox"/> MA モロッコ Morocco | <input type="checkbox"/> UZ ウズベキスタン Uzbekistan |
| <input type="checkbox"/> EC エクアドル Ecuador | <input type="checkbox"/> MD モルドヴァ Republic of Moldova | <input type="checkbox"/> VN ベトナム Viet Nam |
| <input type="checkbox"/> EE エストニア Estonia | <input type="checkbox"/> MG マダガスカル Madagascar | <input type="checkbox"/> YU ユーゴスラヴィア Yugoslavia |
| <input type="checkbox"/> ES スペイン Spain | <input type="checkbox"/> MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア
共和国 The former Yugoslav Republic of
Macedonia | <input type="checkbox"/> ZA 南アフリカ共和国 South Africa |
| <input type="checkbox"/> FI フィンランド Finland | <input type="checkbox"/> MN モンゴル Mongolia | <input type="checkbox"/> ZW ジンバブエ Zimbabwe |
| <input type="checkbox"/> GB 英国 United Kingdom | | |

以下の□は、この様式の施行後に特許協力条約の締約国となった国を指定するためのものである。

- | | | |
|--------------------------|--------------------------|--------------------------|
| <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |
| <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |
| <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |

指定の確認の宣言：出願人は、上記の指定に加えて、規則 4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約の下で認められる他の全ての国の指定を行う。但し、追記欄にこの宣言から除く旨の表示をした国は、指定から除かれる。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。（指定の確認は、指定を特定する通知の提出と指定手数料及び確認手数料の納付からなる。この確認は、優先日から15月以内に受理官庁へ提出しなければならない。）

試PCT/RO/101（第2用紙）（2001年7月）

優先権主張

以下の先の出願に基づく優先権を主張する：

先の出願日 (日、月、年)	先の出願番号	先の出願		
		国内出願：国名	広域出願：*広域官庁名	国際出願：受理官庁名
(1)				
(2)				
(3)				
(4)				
(5)				

☐ 他の優先権の主張（先の出願）が追記欄に記載されている。

上記の先の出願（ただし、本国際出願の受理官庁に対して出願されたものに限る）のうち、以下のものについて、出願書類の認証謄本を作成し国際事務局へ送付することを、受理官庁（日本国特許庁の長官）に対して請求する

☐ すべて ☐ 優先権(1) ☐ 優先権(2) ☐ 優先権(3) ☐ 優先権(4) ☐ 優先権(5) ☐ その他は追記欄参照

*先の出願がARIPO出願である場合には、当該先の出願を行った工業所有権の保護のためのパリ条約同盟国若しくは世界貿易機関の加盟国の少なくとも1ヶ国を表示しなければならない（規則4.10(b)(ii)）：.....

第VII欄 国際調査機関

国際調査機関（ISA）の選択（2以上の国際調査機関が国際調査を実施することが可能な場合、いずれかを選択し二文字コードを記載。）

ISA / JP

先の調査結果の利用請求；当該調査の照会（先の調査が、国際調査機関によって既に実施又は請求されている場合）
出願日（日、月、年） 出願番号 国名（又は広域官庁名）

第VIII欄 申立て

この出願は以下の申立てを含む。（下記の該当する欄をチェックし、右にそれぞれの申立て数を記載）

申立て数

- ☐ 第VIII欄(i) 発明者の特定に関する申立て :
- ☐ 第VIII欄(ii) 出願し及び特許を与えられる国際出願日における出願人の資格に関する申立て :
- ☐ 第VIII欄(iii) 先の出願の優先権を主張する国際出願日における出願人の資格に関する申立て :
- ☐ 第VIII欄(iv) 発明者である旨の申立て（米国を指定国とする場合） :
- ☐ 第VIII欄(v) 不利にならない開示又は新規性喪失の例外に関する申立て :

照合欄：出願の言語

この国際出願の紙様式の枚数は次のとおりである。

(a) 紙形式での枚数

願書（申立てを含む）	5 枚
明細書（配列表を除く）	25 枚
請求の範囲	3 枚
要約書	1 枚
図面	6 枚
小計	40 枚

明細書の配列表部分

(紙形式での出願の場合はその枚数
コンピュータ読み取り可能な形式の有無を問わない。
下記(b)参照)

合 計 40 枚

(b) コンピュータ読み取り可能な形式による配列表部分

(i) ☐ コンピュータ読み取り可能な形式のみ
(実施細則第 801 号(a)(i))(ii) ☐ 紙形式に追加
(実施細則第 801 号(a)(ii))配列表部分を含む媒体の種類（フロッピーディスク、CD-ROM、CD-R その他）と枚数
(追加的写しは右欄 9. (ii)に記載)

この国際出願には、以下にチェックしたものが添付されている。

- | | | |
|--|---|---|
| 1. <input checked="" type="checkbox"/> 手数料計算用紙 | 数 | 1 |
| <input type="checkbox"/> 納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面 | : | |
| <input type="checkbox"/> 国際事務局の口座への振込を証明する書面 | : | |
| 2. <input type="checkbox"/> 個別の委任状の原本 | : | |
| 3. <input type="checkbox"/> 包括委任状の原本 | : | |
| 4. <input type="checkbox"/> 包括委任状の写し（あれば包括委任状番号） | : | |
| 5. <input type="checkbox"/> 記名押印（署名）の欠落についての説明書 | : | |
| 6. <input type="checkbox"/> 優先権書類（上記第VI欄の（ ）の番号を記載する）: | : | |
| 7. <input type="checkbox"/> 国際出願の翻訳文（翻訳に使用した言語名を記載する）: | : | |
| 8. <input type="checkbox"/> 寄託した微生物又は他の生物材料に関する書面 | : | |
| 9. <input type="checkbox"/> コンピュータ読み取り可能なスクレオチド又はアミノ酸配列表
（媒体の種類（フロッピーディスク、CD-ROM、CD-R その他）と枚数も表示する） | : | |
| (i) <input type="checkbox"/> 規則 13 の 3 に基づき提出する国際調査のための写し
（国際出願の一部を構成しない） | : | |
| (ii) <input type="checkbox"/> （左欄(b)(i)又は(b)(ii)にレ印を付した場合のみ）
規則 13 の 3 に基づき提出する国際調査のための写しを含む追加的写し | : | |
| (iii) <input type="checkbox"/> 国際調査のための写しの同一性、又は左欄に記載した
配列表部分を含む写しの同一性についての陳述書を添付 | : | |
| 10. <input type="checkbox"/> その他（書類名を具体的に記載）: | : | |

要約書とともに提示する図面：

本国際出願の言語： 日本語

第X欄 出願人、代理人又は代表者の記名押印

各人の氏名（名称）を記載し、その次に押印する。

大川 宏

受理官庁記入欄

1. 国際出願として提出された書類の実際の受理の日

09.04.02

3. 国際出願として提出された書類を補完する書面又は図面であって
その後期間内に受理されたものの実際の受理の日（訂正日）

4. 特許協力条約第11条（2）に基づく必要な補完の期間内の受理の日

5. 出願人により特定された
国際調査機関

ISA / JP

6. ☒ 調査手数料未払いにつき、国際調査機関に
調査用写しを送付していない。

2. 図面

☐ 受理された☐ 不足図面がある

国際事務局記入欄

記録原本の受理の日：

第IX欄 照合欄：出願の言語

この国際出願の紙様式の枚数は次のとおりである。

(a) 紙形式での枚数

願書(申立てを含む)..... 5 枚
 明細書(配列表を除く)..... 25 枚
 請求の範囲..... 3 枚
 要約書..... 1 枚
 図面..... 6 枚
 小計..... 40 枚
 明細書の配列表部分..... 枚
 (紙形式での出願の場合はその枚数
 コンピュータ読み取り可能な形式の有無を問わない。
 下記(b)参照)
 合 計 40 枚

(b) コンピュータ読み取り可能な形式による配列表部分

- (i) ☐ コンピュータ読み取り可能な形式のみ。
 (実施細則第 801 号(a)(i))
 (ii) ☐ 紙形式に追加
 (実施細則第 801 号(a)(ii))

配列表部分を含む媒体の種類 (フロッピーディスク、CD-ROM、CD-R その他) と枚数
 (追加的写しは右欄 9. (ii) に記載)

この国際出願には、以下にチェックしたものが添付されている。

1. ☒ 手数料計算用紙 数 1
☐ 納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面
☐ 国際事務局の口座への振込を証明する書面
 2. ☐ 個別の委任状の原本
 3. ☐ 包括委任状の原本
 4. ☐ 包括委任状の写し (あれば包括委任状番号)
 5. ☐ 記名押印(署名)の欠落についての説明書
 6. ☐ 優先権書類 (上記第VI欄の () の番号を記載する):
 7. ☐ 国際出願の翻訳文 (翻訳に使用した言語名を記載する):
 8. ☐ 寄託した微生物又は他の生物材料に関する書面
 9. ☐ コンピュータ読み取り可能なスクレオチド又はアミノ酸配列表
 (媒体の種類 (フロッピーディスク、CD-ROM、CD-R その他) と枚数も表示する)
 (i) ☐ 規則 13 の 3 に基づき提出する国際調査のための写し
 (国際出願の一部を構成しない)
 (ii) ☐ (左欄(b)(i)又は(b)(ii)にレ印を付した場合のみ)
 規則 13 の 3 に基づき提出する国際調査のための写しを含む追加的写し
 (iii) ☐ 国際調査のための写しの同一性、又は左欄に記載した
 配列表部分を含む写しの同一性についての陳述書を添付
 10. ☐ その他 (書類名を具体的に記載):

要約書とともに提示する図面:

本国際出願の言語: 日本語

第X欄 出願人、代理人又は代表者の記名押印

各人の氏名(名称)を記載し、その次に押印する。

大川 宏



受理官庁記入欄

1. 国際出願として提出された書類の実際の受理の日

09.04.02

3. 国際出願として提出された書類を補完する書面又は図面であって
その後期間内に受理されたものの実際の受理の日(訂正日)

4. 特許協力条約第 11 条(2) に基づく必要な補完の期間内の受理の日

5. 出願人により特定された
国際調査機関

ISA/JP

6. ☒ 調査手数料未払いにつき、国際調査機関に
調査用写しを送付していない。

2. 図面

☐ 受理された☐ 不足図面がある

国際事務局記入欄

記録原本の受理の日:

明細書

複合希土類異方性ボンド磁石、複合希土類異方性ボンド磁石用コンパウンドおよびそれらの製造方法

技術分野

本発明は、磁気特性に優れると共にその経時変化が非常に少ない複合希土類異方性ボンド磁石と、それに用いるコンパウンドおよびそれらの製造方法に関するものである。

背景技術

硬質磁石（永久磁石）は、モータ等の各種機器に利用されている。中でも、小型で高出力が要求される車両モータ等への需要要求が強い。このような硬質磁石は、高性能な磁気特性を有することは勿論、モータ等の信頼性を確保する観点から、その経時変化が少ないことが求められている。

高い磁気特性という観点から、現在では、希土類元素（R）とホウ素（B）と鉄（Fe）とからなるRFeB系の希土類磁石、特に、希土類異方性磁石の開発が盛んに行われている。ところが、この希土類磁石は、その主成分であるFeの酸化等により劣化し易く、その高い磁気特性を安定的に確保することは難しい。特に、室温以上で希土類磁石を使用する場合、その磁気特性が急激に低下する傾向にある。このような磁石の経時変化は、通常、永久減磁率（%）により定量的に指標されるが、従来の希土類異方性磁石の場合、この永久減磁率が10%を超えるものがほとんどであった。この、永久減磁率は、高温（120℃）下で長時間（1000時間）経過した後に、再着磁しても復元しない磁束の減少割合である。

最近では、大小粒径を有する2種の希土類磁石粉末（以下、単に「磁粉」と適宜いう。）とバインダである樹脂とを混合して加圧成形した希土類ボンド磁石（以下、単に「ボンド磁石」と適宜いう。）が提案されている。この場合、大粒径の磁粉により形成された隙間に小粒径の磁粉が入り、全体として充填率（相対密

度)が向上する。磁石の密度増加による磁気特性の向上は勿論、そこへの酸素や水分の侵入が抑制されて、磁石の耐候性や耐熱性が向上する。このようなボンド磁石に関する開示は、次に挙げるような公報になされている。

(1) 特開平5—152116号公報(以下、「公報1」という。)

この公報には、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 合金からなる粒径 $500\mu\text{m}$ 以下の磁粉(以下、適宜「 NdFeB 系合金粉末」という。)と、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}$ 合金からなる粒径 $5\mu\text{m}$ 以下の磁粉(以下、適宜「 SmFeN 系合金粉末」という。)とを種々の割合で混合した混合粉末に、バインダーであるエポキシ樹脂を添加して、加圧成形し、熱硬化させたボンド磁石が開示されている。

この場合、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 合金を単に微粉砕してしまうとその特性が低下することと、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}$ 合金がもともと単軸粒子の保磁力機構を有するものであることを考慮して、混合する粉末の粒径がそれぞれ定められている。そして、粗い NdFeB 系合金粉末の粒子間にできた隙間を、細かい SmFeN 系合金粉末で埋めることで、全体的に充填率が向上し、高い磁気特性(最大エネルギー積($\text{BH})_{\text{max}}:128\text{kJ}/\text{m}^3$)のボンド磁石を得ている。

(2) 特開平6—132107号公報(以下、「公報2」という。)

この公報にも、上記公報1と同様に、 NdFeB 系合金粉末と SmFeN 系合金粉末とバインダ樹脂とを混合して加圧成形したボンド磁石が開示されているが、公報1のレベルを超えるものではない。

この公報には、各磁粉の粒径と配合割合については開示されているものの、ボンド磁石の性能に大きく影響する磁粉の磁気特性やその製造方法については、何ら具体的な開示がなされていない。

(3) 特開平9—92515号公報(以下、「公報3」という。)

この公報には、平均粒径 $150\mu\text{m}$ の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ からなる異方性磁石粉末と、平均粒径 $0.5\sim10.7\mu\text{m}$ で配合割合が $0\sim50\text{wt}\%$ の $\text{SrO}\cdot6\text{Fe}_2\text{O}_3$ からなるフェライト磁石粉末と、バインダである $3\text{wt}\%$ のエポキシ樹脂とを混合し、真空乾燥、加圧成形および熱硬化させて得た異方性ボンド磁石が開示されている。このボンド磁石は、 $132\sim150.14\text{kJ}/\text{m}^3$ の高磁気特性と、永久減磁率 $-3.5\sim-5.6\%$ の優れた耐熱性および耐候性を発揮して

いる。ただし、この公報でいう永久減磁率は、 $100^{\circ}\text{C} \times 1000$ 時間後のものである。また、上記NdFeB系合金粉末は、機械粉碎による磁気特性の劣化を防ぐために、HDDR法（水素処理法）を用いてインゴットを粉碎したものであり、Nd₂Fe₁₄B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織からなる。

この公報には、粒径の異なる2種の磁粉を混合してボンド磁石を製造する利点として、次のような説明がなされている。すなわち、ボンド磁石の成形に際して、異方性NdFeB系合金粉末の粒子間隙（または、薄くバインダ樹脂で被覆されたその粉末の粒子間隙）に、フェライト磁石粉末が優先的に充填させる結果、ボンド磁石の空孔率が減少する。

これにより、①O₂、H₂Oの侵入が抑制されて、耐熱性や耐候性が向上する。②従来空孔であった部分がフェライト磁石粉末粉末で置換されることで、磁気特性が向上する。さらに、③ボンド磁石の成形時に生じるNdFeB系合金粉末への応力集中をフェライト磁石粉末が緩和する結果、NdFeB系合金粉末の割れが抑制される。そのため、ボンド磁石中で非常に活性な金属破面が露出することが抑制されて、ボンド磁石の耐熱性や耐候性がさらに向上する。加えて、④そのフェライト磁石粉末による応力集中の緩和により、NdFeB系合金粉末内への歪みの導入も抑制されて、磁気特性がさらに向上する。

（4）特開平9—115711号公報（以下、「公報4」という。）

この公報には、上記公報3のフェライト磁石粉末に替えて、平均結晶粒径50nm以下の体心立方鉄および鉄ホウ化物を含む軟質磁性相とNd₂Fe₁₄B型結晶を有する硬質磁性相とからなる平均粒径3.8μmの等方性ナノコンポジット磁石粉末を使用したボンド磁石が開示されている。このボンド磁石は、136.8～150.4kJ/m³の高磁気特性と、永久減磁率-4.9～-6.0%の優れた耐熱性および耐候性を発揮している。この永久減磁率の測定方法および異方性NdFeB系磁石粉末の製造方法は、公報3、4の場合と同様である。

この公報4では、比較例として、NdFeB系異方性磁石粉末と、それよりも粒径の小さいSmFeN系磁石粉末とを混合して製造したボンド磁石も開示している。そのボンド磁石は、初期磁気特性に優れるものの（(BH)_{max}: 146.4～152.8kJ/m³）、SmFeN系磁石粉末の劣化（耐酸化性の弱

さ)に起因して、耐候性が劣ること(永久減磁率: $-13.7 \sim -13.1\%$)が示されている。この耐候性の劣化について開示されている点が、公報1や公報2と異なるところである。

(5) 特開平10-289814号公報(以下、「公報5」という。)

この公報には、磁石粉末の充填率と配向性とを向上させた異方性ボンド磁石が開示されている。具体的には、一粒子がほぼ一結晶粒で構成された磁石粉末(粗粉末)と、それよりも大幅に粒径が小さい粒子からなる磁石粉末(微粉末)と混合し、加圧成形、キュア熱処理を行って製作されたボンド磁石が開示されている。そこで使用されている両磁石粉末は、同一のSm-Co-Fe-Cu-Zr系合金を機械粉砕したものをさらに分級したものである。平均結晶粒径をD、粉末粒径をdとしたとき、その粗粉末は $0.5D \leq d \leq 1.5D$ を満たし、その微粉末は $0.01D \leq d \leq 0.1D$ を満たすように調製されている。

ちなみに、HDDR処理により得られた磁石粉末は、その組織変態により、平均結晶粒径は $0.3 \mu\text{m}$ 程度、磁石粉末の粒径は約 $200 \mu\text{m}$ 程度である。このため、HDDR処理により得られた磁石粉末を用いたボンド磁石は、上記のようなボンド磁石とは当然に異なったものとなる。

以上のように、粒径の異なる磁石粉末を混合してボンド磁石を製造し、ボンド磁石の磁気特性や耐候性等を向上させる方法が種々提案されてきた。しかし、未だ、その性能は不十分である。特に、NdFeB系磁石粉末とSmFeN系磁石粉末を混合したボンド磁石の場合、上記公報4等にもあったように、初期磁気特性には優れるものの、耐候性は劣るものとされてきた。

本発明は、このような事情に鑑みてなされたものである。すなわち、これまでになく、磁気特性および耐候性に優れたボンド磁石を提供することを目的とする。また、そのボンド磁石の製造に適したコンパウンドやそれらの製造方法を提供することを目的とする。

発明の開示

本発明者は、上記課題を解決すべく鋭意研究し、各種系統の実験を重ねた結果、これまでの常識を覆し、NdFeB系磁石粉末とSmFeN系磁石粉末とを用

いた場合でも、初期磁気特性のみならず、耐候性にも優れるボンド磁石が得られることを新たに見だし、本発明を完成させるに至った。

(複合希土類異方性ボンド磁石)

すなわち、本発明の複合希土類異方性ボンド磁石は、ネオジウム (Nd) と鉄 (Fe) とホウ素 (B) とを主成分とする Nd Fe B 系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が $50 \sim 400 \mu\text{m}$ である Nd Fe B 系異方性磁石粉末と該 Nd Fe B 系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第 1 界面活性剤とからなる Nd Fe B 系粗粉末を $50 \sim 84$ 質量% (mass%) と、サマリウム (Sm) と Fe と窒素 (N) とを主成分とする平均粒径が $1 \sim 10 \mu\text{m}$ である Sm Fe N 系異方性磁石粉末と該 Sm Fe N 系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第 2 界面活性剤とからなる Sm Fe N 系微粉末を $15 \sim 40$ mass% と、

バインダである樹脂を $1 \sim 10$ mass% 含有してなり、

該樹脂内に該 Sm Fe N 系微粉末が均一に分散してなる強磁性流体層の硬化層 (固化層) によって該 Nd Fe B 系粗粉末のほぼ全ての構成粒子が囲繞されると共に該 Nd Fe B 系粗粉末の構成粒子間に形成された隙間が該強磁性流体層の硬化層 (固化層) によって密に充填されていることを特徴とする。

これにより、従来になく優れた磁気特性を示す共にその経時変化を非常に低く抑えられる複合希土類異方性ボンド磁石 (以下、適宜、「ボンド磁石」という。) が得られた。具体例を挙げれば、そのボンド磁石は、 120°C で 1000 時間経過後に再着磁して得られる磁束の減少割合を示す永久減磁率が 6% 以下、 5% 以下、さらには 4.5% 以下という優れた耐熱性、耐候性を示す。また、最大エネルギー積 $(BH)_{\text{max}}$ でいえば、例えば、 $155 \text{ kJ}/\text{m}^3$ 以上、 $165 \text{ kJ}/\text{m}^3$ 以上、さらには $180 \text{ kJ}/\text{m}^3$ 以上もの高い磁気特性を示す。

このように、初期の磁気特性のみならず、その経時変化が非常に小さいボンド磁石が得られた理由およびメカニズムは、現状、次のように考えることができる。

Nd Fe B 系磁石粉末と Sm Fe N 系磁石粉末とからなる複合希土類異方性ボンド磁石の経年劣化の主因は、前述した公報 4 にも記載されていたように、Sm Fe N 系磁石粉末の酸化のし易さにあるとこれまで考えられていた。ところが、

本発明者が鋭意研究したところ、水素化処理により得られたNdFeB系異方性磁石粉末とSmFeN系異方性磁石粉末とからなるボンド磁石の場合、経年劣化の主因はむしろ、ボンド磁石の成形時に発生するNdFeB系異方性磁石粉末粒子のマイクロクラックによる割れにあることを突き止めた。このマイクロクラックが発生すると、活性な金属破面が露出し、NdFeB系異方性磁石粉末の酸化が進行して、ボンド磁石の経年劣化が生じると考えられる。特に、水素化処理されて得られたNdFeB系異方性磁石粉末は、マイクロクラックによる割れ感受性が高いため、上記経年劣化が生じ易いことが解った。

前述の公報1、2または4にあったように、単に、水素化処理したNdFeB系異方性磁石粉末とSmFeN系磁石粉末と樹脂とを配合混合する程度では、ボンド磁石の成形時に生じる応力の緩和が不十分で、NdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子に生じるマイクロクラックによる割れを抑制または防止することはできない。

本発明者は、割れ感受性の高いNdFeB系異方性磁石粉末の各構成粒子を、加熱成形中に流体層に浮遊したような状態として、ボンド磁石の成形時にその構成粒子に生じる応力を緩和することを着想した。すなわち、NdFeB系異方性磁石粉末の粒子間に形成された隙間を、バインダである樹脂と一体性をもったSmFeN系異方性磁石粉末の微粉（SmFeN系微粉末）で充填することにした。

本明細書でいう強磁性流体層は、バインダである樹脂とこの樹脂中に均一分散したSmFeN系微粉末とからなり、その樹脂の軟化点以上で液状化している層である。従って、この強磁性流体層は樹脂の軟化温度域で生じる。一方、その硬化層は、本発明でいう樹脂が熱硬化性樹脂でも熱可塑性樹脂でも良いことから、強磁性流体層または将来強磁性流体層となり得るものが固化した層（固化層または固化樹脂層）を意味する。勿論、その樹脂が熱硬化性樹脂の場合なら、硬化点以上でその強磁性流体層は真正の硬化層となる。例えば、その硬化点以上に加熱してボンド磁石を成形したとき、強磁性流体層が硬化して硬化層となる。

なお、熱硬化性樹脂を使用して後述のコンパウンドを製造する場合、加熱混練中の温度は、その樹脂の軟化点以上、硬化点未満とすることが好ましい。硬化点

以上の温度で加熱混練して製造したコンパウンドを用いると、得られたボンド磁石に割れが生じたり、磁気特性が劣化したりするからである。

ところで、樹脂が軟化する温度域で、その強磁性流体層は高い流動性をもち、NdFeB系異方性磁石粉末は界面活性剤を介して、その強磁性流体層によって良好に潤滑される。その結果、ボンド磁石の成形時に非常に高い応力緩和効果が得られ、前述のマイクロクラックの発生やそれに伴う割れが防止でき、新生破面の酸化に伴う磁気特性の経年劣化が著しく低減される。

ここで注意すべきことは、従来のように、粒径の異なる磁石粉末とバインダである樹脂とを単に混合しただけでは、加熱成形時に、本発明のように、NdFeB系異方性磁石粉末が強磁性流体層に浮遊したような状態とはできない。SmFeN系異方性磁石粉末は勿論、NdFeB系異方性磁石粉末も、バインダである樹脂に強くなじんでいる必要がある。そこで、本発明では、その樹脂に対して界面の自由エネルギーを低下させる界面活性剤により、NdFeB系異方性磁石粉末とSmFeN系異方性磁石粉末とがそれぞれ被覆された状態とした。この界面活性剤を介在させることにより、樹脂内で、NdFeB系異方性磁石粉末とSmFeN系異方性磁石粉末とは高い流動性を発揮する。そして、ボンド磁石の成形時に、NdFeB系異方性磁石粉末が、まるで前述の強磁性流体層に浮かんでいるかのような状態となる。なお、本願明細書では、便宜上、NdFeB系異方性磁石粉末とその表面を被覆する界面活性剤とを合わせてNdFeB系粗粉末と呼び、SmFeN系異方性磁石粉末とその表面を被覆する界面活性剤とを合わせてSmFeN系微粉末と呼ぶ。

(複合希土類異方性ボンド磁石用コンパウンド)

本発明は、上記ボンド磁石の製造に適したコンパウンドとしても把握できる。

すなわち本発明は、NdとFeとBとを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が $50 \sim 400 \mu\text{m}$ であるNdFeB系異方性磁石粉末と該NdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第1界面活性剤とからなるNdFeB系粗粉末を $50 \sim 84$ 質量% (mass%) と、SmとFeとNとを主成分とする平均粒径が $1 \sim 10 \mu\text{m}$ であるSmFeN系異方性磁石粉末と該SmFeN系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第2界

面活性剤とからなるSmFeN系微粉末を15～40mass%と、バインダである樹脂を1～10mass%含有してなり、

該NdFeB系粗粉末のほぼ全ての構成粒子の表面が、該樹脂内に該SmFeN系微粉末が均一に分散してなり将来加熱成形されたときに強磁性流体層となる樹脂層で被覆されていることを特徴とする複合希土類異方性ボンド磁石用コンパウンドとしても良い。

(複合希土類異方性ボンド磁石およびそのコンパウンドの製造方法)

さらに、本発明は、上記ボンド磁石やコンパウンドの製造方法としても把握できる。

すなわち、本発明は、NdとFeとBとを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が50～400 μ mであるNdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を第1界面活性剤で被覆してなるNdFeB系粗粉末を50～84mass%と、SmとFeとNとを主成分とする平均粒径が1～10 μ mであるSmFeN系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を第2界面活性剤で被覆してなるSmFeN系微粉末を15～40mass%と、バインダである樹脂を1～10mass%とを混合する混合工程と、該混合工程後に得られた混合物を該樹脂の軟化点以上の温度に加熱して混練する加熱混練工程とからなり、

該加熱混練工程中で、該NdFeB系粗粉末のほぼ全ての構成粒子の表面が、該樹脂内に該SmFeN系微粉末が均一に分散してなり将来加熱成形されたときに強磁性流体層となる樹脂層で被覆されたコンパウンドが形成されることを特徴とする複合希土類異方性ボンド磁石用コンパウンドの製造方法としても良い。

また、本発明は、NdとFeとBとを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が50～400 μ mであるNdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を第1界面活性剤で被覆してなるNdFeB系粗粉末を50～84mass%と、SmとFeとNとを主成分とする平均粒径が1～10 μ mであるSmFeN系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を第2界面活性剤で被覆してなるSmFeN系微粉末を15～40mass%と、バインダである樹脂を1～10mass%とからなるコンパウンドを該樹脂の軟化点以上の温度に加熱して磁場中で成形し、

該加熱磁場成形中で、該樹脂内に該SmFeN系微粉末が均一に分散して形成された強磁性流体層によって該NdFeB系粗粉末のほぼ全ての構成粒子が囲繞されていると共に該NdFeB系粗粉末の構成粒子間に形成された隙間が密に充填された状態となった後に、該強磁性流体層が硬化してボンド磁石が形成されることを特徴とする複合希土類異方性ボンド磁石の製造方法としても良い。

図面の簡単な説明

図1Aは、本発明に係る複合希土類異方性ボンド磁石用コンパウンドを模式的に示した図である。

図1Bは、従来のボンド磁石用コンパウンドを模式的に示した図である。

図2Aは、本発明に係る複合希土類異方性ボンド磁石を模式的に示した図である。

図2Bは、従来のボンド磁石を模式的に示した図である。

図3は、成形圧力と相対密度との関係を示すグラフである。

図4は、本発明に係る複合希土類異方性ボンド磁石を観察したSEM2次電子像写真であり、ボンド磁石の金属粉末に注目したものである。

図5は、本発明に係る複合希土類異方性ボンド磁石を観察したNdのEPMA像写真であり、NdFeB系異方性磁石粉末のNd元素に注目したものである。

図6は、本発明に係る複合希土類異方性ボンド磁石を観察したSmのEPMA像写真であり、SmFeN系異方性磁石粉末のSm元素に注目したものである。

発明を実施するための最良の形態

A. 実施形態

以下に実施形態を挙げて、本発明をより詳しく説明する。以下の内容は、適宜、本発明のボンド磁石のみならず、コンパウンドやそれらの製造方法にも該当する。

(1) NdFeB系異方性磁石粉末

①NdFeB系異方性磁石粉末は、NdとFeとBとを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた粉末である。

本発明でいう水素化処理には、HDDR処理法 (hydrogenation-decomposition-disproportionation-recombination) や d-HDDR 処理法がある。

HDDR 処理法は、主に 2 つの工程からなる。すなわち、 100 kPa (1 atm) 程度の水素ガス雰囲気中で $500\sim 1000^{\circ}\text{C}$ に保持し、三相分解不均化反応を起こさせる第 1 工程 (水素化工程) と、その後真空にして脱水素を行う脱水素工程 (第 2 工程) とからなる。脱水素工程は、例えば、水素圧力を 10^{-1} Pa 以下の雰囲気にする工程である。また、その温度は、例えば、 $500\sim 1000^{\circ}\text{C}$ とすれば良い。なお、本明細書でいう水素圧力は、特に断らない限り水素の分圧を意味する。従って、各工程中の水素分圧が所定値内であれば、真空雰囲気でも不活性ガス等の混合雰囲気でも良い。その他、HDDR 処理自体については、特公平 7-68561 号公報、特許第 2576671 号公報等に詳しく開示されているので、適宜参照できる。

一方、d-HDDR 処理は、公知文献 (三嶋ら：日本応用磁気学会誌、24 (2000)、p. 407) にも詳細に報告されているように、室温から高温にかけて、NdFeB 系合金と水素との反応速度を制御することによりなされる。具体的には、室温でその合金に水素を十分に吸収させる低温水素化工程 (第 1 工程) と、低水素圧力下で三相分解不均化反応を起こさせる高温水素化工程 (第 2 工程) と、可能な限り高い水素圧力下で水素を解離させる第 1 排気工程 (第 3 工程) と、その後の材料から水素を除去する第 2 排気工程 (第 4 工程) の 4 つの工程から主になる。HDDR 処理と異なる点は、温度や水素圧力の異なる複数の工程を設けることで、NdFeB 系合金と水素との反応速度を比較的緩やかに保ち、均質な異方性磁粉が得られるように工夫されている点である。

具体的にいうと、低温水素化工程は、例えば、水素圧力が $30\sim 200\text{ kPa}$ で 600°C 以下の水素ガス雰囲気中に保持する工程である。高温水素化工程は、水素圧力が $20\sim 100\text{ kPa}$ で $750\sim 900^{\circ}\text{C}$ の水素ガス雰囲気中に保持する工程である。第 1 排気工程は、水素圧力が $0.1\sim 20\text{ kPa}$ で $750\sim 900^{\circ}\text{C}$ の水素ガス雰囲気中に保持する工程である。第 2 排気工程は、水素圧力を 10^{-1} Pa 以下の雰囲気中に保持する工程である。

このような上記HDDR処理法やd-HDDR処理法を用いることにより、NdFeB系異方性磁石粉末を工業レベルで量産できる。特に、異方性を高めた高性能な磁石粉末を量産する観点からは、d-HDDR処理法が好ましい。

②NdFeB系異方性磁石粉末の平均粒径を $50 \sim 400 \mu\text{m}$ としたのは、 $50 \mu\text{m}$ 未満では、保磁力(iH_c)が低下し、 $400 \mu\text{m}$ を超えると残留磁束密度(B_r)が低下するからである。その平均粒径は、 $74 \sim 150 \mu\text{m}$ であるとより好ましい。

また、その配合比を $50 \sim 84 \text{mass}\%$ としたのは、 $50 \text{mass}\%$ 未満では最大エネルギー積(BH) $_{\text{max}}$ が低下し、 $84 \text{mass}\%$ を超えると、強磁性流体層が相対的に少なくなり、永久減磁の抑制効果が薄れるからである。その配合比は、 $70 \sim 80 \text{mass}\%$ であるとより好ましい。なお、本明細書でいう $\text{mass}\%$ は、ボンド磁石全体またはコンパウンド全体を $100 \text{mass}\%$ としたときの割合である。

③NdFeB系異方性磁石粉末の組成は、特に限定されないが、例えば、Ndが $11 \sim 15$ 原子% (at%)、Bが $5.5 \sim 15$ 原子% (at%) およびFeを主成分とするものであり、適宜、不可避不純物を含み得る。代表的なものは、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を主相とするものである。この場合、Ndが $11 \text{at}\%$ 未満では α Fe相が析出して磁気特性が低下し、 $15 \text{at}\%$ を超えると $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が減少し磁気特性が低下する。また、Bが $5.5 \text{at}\%$ 未満では、軟磁性の R_2Fe_{17} 相が析出して磁気特性が低下し、 $8.0 \text{at}\%$ を超えると $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が減少し磁気特性が低下する。

NdFeB系異方性磁石粉末は、Nd、BおよびFe以外に、その磁気特性等を向上させる種々の元素を含有しても良い。

例えば、 $0.01 \sim 1.0 \text{at}\%$ のガリウム(Ga)、 $0.01 \sim 0.6 \text{at}\%$ のニオブ(Nb)の1種または2種を含有することが好ましい。Gaを含有することで、NdFeB系異方性磁石粉末の保磁力が向上する。ここで、Gaの含有量が $0.01 \text{at}\%$ 未満では保磁力の向上の効果が得られず、 $1.0 \text{at}\%$ を超えると逆に保磁力を減少させる。Nbを含有することで、水素化処理における順組織変態および逆組織変態の反応速度が容易にコントロールできるようになる

。ここで、Nbの含有量が0.01at%未満では反応速度をコントロールするのが難しく、0.6at%を超えると保磁力を減少させる。特にGa、Nbを上記範囲内で複合含有すると、単体で含有した場合に比べ保磁力及び異方化とも向上させることができ、その結果(BH)maxを増加させる。

また、アルミニウム(Al)、ケイ素(Si)、チタン(Ti)、バナジウム(V)、クロム(Cr)、マンガン(Mn)、ニッケル(Ni)、銅(Cu)、ゲルマニウム(Ge)、ジルコニウム(Zr)、モリブデン(Mo)、インジウム(In)、スズ(Sn)、ハフニウム(Hf)、タンタル(Ta)、タングステン(W)、鉛(Pb)のうち1種または2種以上を合計が0.001~5.0at%を含有することが好ましい。これらの原子を含有することで、得られた磁石の保磁力、角形比を改善することができる。また、含有量が0.001at%未満では磁気特性の改善の効果が現れず、5.0at%を超えると析出相などが析出し保磁力が低下する。

さらに、コバルト(Co)を0.001~20at%で含有することが好ましい。Coを含有することで、ボンド磁石のキュリー温度を上げることができ、温度特性が改善される。ここで、Coの含有量が0.001at%未満ではCo含有の効果が現れず、20at%を超えると残留磁束密度が低下し磁気特性が低下するようになる。

NdFeB系異方性磁石粉末の原料合金の調製方法は、特に限定されないが、一般的な方法として、高純度の合金材料を用い、所定の組成となるようにそれぞれを用意する。これらを混合した後に、高周波溶解法や溶解炉等により溶解し、これを鑄造して合金のインゴットを作成する。このインゴットを原料合金とし、これを粉砕して粗粉末状のものを原料合金としても良い。さらに、原料インゴットに均質化処理を施して組成分布の偏りを減少させた合金を原料合金とすることもできる。加えて、この均質化処理したインゴットを粉砕して粗粉末状とし、これを原料合金とすることもできる。なお、インゴットの粉砕や、上記水素化処理後に行う粉末化は、乾式若しくは湿式の機械粉砕(ジョークラッシャ、ディスクミル、ボールミル、振動ミル、ジェットミル等)等を用いて行うことができる。

(2) SmFeN系異方性磁石粉末

① SmFeN系異方性磁石粉末は、ボンド磁石の磁気特性、特に最大エネルギー積を向上させる上で有効である。

その組成は、特に限定されないが、適宜、不可避不純物を含んでも良い。代表的なものは、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}$ を主相とするものである。

SmFeN系異方性磁石粉末の場合も、上記Sm、NおよびFe以外に、その磁気特性等を向上させる種々の元素を含有しても良い。

ちなみに、SmFeN系異方性磁石粉末は、例えば、次のような方法により得ることができる。すなわち、所望する組成のSm-Fe合金を溶体化処理して窒素ガス中で粉砕する。その粉砕後、 $\text{NH}_3 + \text{H}_2$ 混合ガス中で窒化処理を行った後に冷却する。そして、ジェットミル等で微粉砕すれば、 $10\mu\text{m}$ 以下のSmFeN系異方性磁石粉末が得られる。

② SmFeN系異方性磁石粉末は、単磁区粒子サイズとなる粒径にすることで、高い保磁力が発生する。この観点から、その平均粒径を $1 \sim 10\mu\text{m}$ とした。 $1\mu\text{m}$ 未満では、①酸化し易くなり、②残留磁束密度が低下し最大エネルギー積（ $(BH)_{\text{max}}$ ）も低下するため好ましくない。 $10\mu\text{m}$ を超えると①単磁区粒子が得られず、②保磁力が低下するため好ましくない。

また、その配合比を $15 \sim 40\text{mass}\%$ としたのは、 $15\text{mass}\%$ 未満では、NdFeB系異方性磁石粉末の表面を強磁性流体層として被覆するには量が少ない。一方、 $40\text{mass}\%$ を超えると、最大エネルギー積（ $(BH)_{\text{max}}$ ）が低下する。

（3）界面活性剤および樹脂

①界面活性剤を用いるのは、加熱成形時に、NdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の全面を界面活性剤を介して、強磁性流体層に浸すためである。これにより、割れ感受性の高いNdFeB系異方性磁石粉末が強磁性流体層の海の中に浮遊したような状態で存在するようになる。そして、ボンド磁石を成形する際、その回転等が容易となり、応力集中が大幅に緩和され、マイクロクラックの進展が防止される。

また、SmFeN系異方性磁石粉末に界面活性剤を吸着させることにより、バインダである樹脂とSmFeN系異方性磁石粉末の結合度が強まる。これにより、

両者の一体性が強まり、それらによって構成される強磁性流体層は擬似的な流体として振舞うようになる。しかも、その強磁性流体層内では、 SmFeN 系異方性磁石粉末が樹脂内に均一に分散した状態となり、ボンド磁石の相対密度および磁気特性を大きく向上させる。従って、強磁性流体層の形成には、樹脂と SmFeN 系異方性磁石粉末のみならず、その SmFeN 系異方性磁石粉末の粒子表面を被覆する界面活性剤の存在が不可欠である。

本発明の場合、 NdFeB 系異方性磁石粉末の粒子表面を被覆する界面活性剤と、 SmFeN 系異方性磁石粉末の粒子表面を被覆する界面活性剤とは、必ずしも同一である必要はない。そこで、本明細書では、それらをそれぞれ第1界面活性剤および第2界面活性剤として区別した。もっとも、両者に同一の界面活性剤を使用するほうが生産管理上有利である。

このような界面活性剤の種類は、特に限定されないが、バインダとしてしようされる樹脂の種類を考慮して決定されなければならない。例えば、その樹脂がエポキシ樹脂なら、界面活性剤としてチタネート系カップリング剤を挙げることができる。このほか、樹脂と界面活性剤との組み合わせとして、フェノール樹脂ならシラン系カップリング剤を利用できる。

②本発明で用いる樹脂は、ボンド磁石中のバインダとしての役割を果たす。それは、熱硬化性樹脂に限らず、熱可塑性樹脂でも良い。熱硬化性樹脂には、例えば、前述のエポキシ樹脂、フェノール樹脂等あり、熱可塑性樹脂には、例えば12ナイロン、ポリフェニレンサルファイド等がある。

本発明で樹脂の配合比を1～10mass%としたのは、1mass%未満では、バインダとしての結合力に欠け、10mass%を超えると高い $(BH)_{max}$ 等の磁気特性が低下する。

③本発明では、界面活性剤で被覆した各磁石粉末を NdFeB 系粗粉末および SmFeN 系微粉末と呼んでいるが、「粗」粉末または「微」粉末は、それぞれの相対的な粒径を便宜的に呼称するために用いているだけに過ぎない。

この NdFeB 系粗粉末は、例えば、 NdFeB 系異方性磁石粉末と上記第1界面活性剤の溶液とを攪拌後に乾燥させる第1被覆工程により得られる。同様に、 SmFeN 系微粉末は、 SmFeN 系異方性磁石粉末と上記第2界面活性剤の

溶液とを攪拌後に乾燥させる第2被覆工程により得られる。こうして得られた界面活性剤層は、膜厚が $0.5 \sim 2 \mu\text{m}$ 程度のものであり、各粉末粒子の全面をコーティングしている。

(4) コンパウンドとボンド磁石

本発明のコンパウンドは、例えば、NdFeB系粗粉末とSmFeN系微粉末と樹脂とを混合した後に、それらの混合物を加熱混練して得られるものである。その形態は、粒径が $50 \sim 500 \mu\text{m}$ 程度の顆粒状である。この様子を、SEM観察により撮影したEPMA写真に基づき模式的に転写したものを図1Aに示す。図1Bは、NdFeB系異方性磁石粉末と樹脂とからなる従来のコンパウンドの様子を模式的に示したものである。図1Bから判るように、従来のコンパウンドの場合は、NdFeB系異方性磁石粉末の粒子表面に、樹脂が吸着しているだけである。これに対し、図1Aから判るように、本発明のコンパウンドの場合は、SmFeN系異方性磁石粉末が樹脂に包込まれた状態となっているSmFeN系微粉末が、NdFeB系異方性磁石粉末の粒子表面に均一に分散した状態となっている。そして、その周囲がさらに樹脂により埋められた状態となっている。

次に、これらのコンパウンドを用いて、加熱磁場中で加圧成形して得られたボンド磁石を、図1A、Bと同様に模式的に示したものが図2A、Bである。図2Aは本発明のボンド磁石を示し、図2Bは従来のボンド磁石を示す。図2Bをみれば明らかなように、従来のボンド磁石の場合、加圧成形に際して、NdFeB系異方性磁石粉末の粒子同士が直接接触して局部に応力が集中している。その結果、水素化処理されて割れ感受性が高くなっているNdFeB系異方性磁石粉末の粒子は、マイクロクラックやそれによる割れ等を生じている。そして、新たに形成された活性な破面に劣化の原因となる酸化層が形成されるようになる。

一方、本発明のボンド磁石の場合は、コンパウンドを加熱し磁場中で成形している状態のときは、図2Aから明らかなように、NdFeB系粗粉末の各構成粒子の表面は、SmFeN系微粉末と樹脂とにより均一に囲繞された状態となっており、NdFeB系粗粉末の各構成粒子間にはそれらが密に充填された状態となっている。その結果、SmFeN系微粉末と樹脂とによって形成された強磁性流体層中に、NdFeB系粗粉末がまるで浮遊しているかのような状態となってい

る。そして、その強磁性流体層による高い流動性によって、NdFeB系粗粉末の粒子同士は潤滑性に優れた環境に置かれた状態となる。このため、NdFeB系粗粉末の粒子同士は大きな姿勢自由度を得て、極一部分で直接接触することが回避され、従来のボンド磁石内部に生じていたような応力が集中が緩和される。こうして、マイクロクラックやそれによる割れ等が抑制、防止されて、経年劣化が非常に少ないボンド磁石が得られた。

ここで本明細書でいう「流動性」とは、加熱成形中の強磁性流体層に対するNdFeB系異方性磁石粉末の、応力緩和のための回転等の移動の容易さ、姿勢自由度の大きさである。

この流動性は、使用するコンパウンドの粘度、ボンド磁石の成形時におけるせん断トルク、任意の成形圧力下での成形した場合のボンド磁石の相対密度等のいずれによっても、指標することができる。但し、本明細書では、相対密度をその流動性の指標とした。なぜなら、相対密度を測定した試料そのもので目的である永久減磁率を測定できるからである。

ここで相対密度とは、原料の配合比から決る理論密度に対する、成形体の密度の比率である。

次に、実際に、種々の成形圧力下で成形した場合の成形圧力と、得られた成形体の相対密度との関係を調べた結果を図3に示した。

コンパウンドに印可する成形圧力を増加させていくと、線①のように、真密度に至るまで直線的に密度が増加することが理想的である。しかし、ボンド磁石のような磁石粉末と樹脂との混合体を加圧成形した場合、通常、それらの間の流動性は不十分である。このため、線②のように、成形圧力の増加と共に、理想曲線である線①から下方へ大幅にシフトした状態となる。これは、成形圧力が増加すると、圧縮エネルギーが磁石粉末の粒子同士の摩擦やその粒子同士の接触時の応力集中による粒子破壊等によって、大幅なエネルギー消費がなされ、密度の向上に寄与しなくなるためである。

これに対し、本発明のコンパウンドを用いてボンド磁石を成形する場合、前述した強磁性流体層の流動性が高いために、コンパウンドの流動性も高くなり、線③のようになる。つまり、成形圧力が上昇しても、強磁性流体層の存在により、

NdFeB系粗粉末はハイレベルな擬液体潤滑がなされるような状態となる。そして、その磁石粉末同士の摩擦や磁石粉末同士の直接的な接触による応力集中等が緩和される。その結果、NdFeB系異方性磁石粉末の粒子破壊等が大幅に低減し、無駄なエネルギー消費が抑制されて、成形圧力エネルギーが密度の向上に有効に利用される。従って、本発明の場合、成形圧力と相対密度との関係が従来よりも、理想的な状態（線①）に近づくこととなる。

その相対密度による流動性の比較をより容易とするために、本明細書では、特定条件下でボンド磁石を成形したときの相対密度を流動性の指標とすることとした。すなわち、成形温度150℃、磁場1.2MA/m、成形圧力882MPaの条件下で加熱磁場成形した際に得られるボンド磁石の相対密度を使用した。本発明の場合、この相対密度が94～99%という高い値を示す。逆にいえば、この相対密度が94%未満では流動性が不十分でNdFeB系異方性磁石粉末の粒子破壊が進行し、新生面の酸化等によって経年劣化を招く。一方、相対密度の上限を99%以下としたのは、量産レベルでの製造上、高密度比に限界があるからである。

B. 実施例

（試料の製造）

（1）NdFeB系粗粉末の製造

①NdFeB系異方性磁石粉末の製造

本発明に係る実施例およびその比較例に使用されるNdFeB系異方性磁石粉末として、表1に示す組成をもつ試料をd-HDDR処理により製造した。具体的には、先ず、表1に示した組成に調製した合金インゴット（30kg程度）を溶解・鑄造して製造した。このインゴットにアルゴンガス雰囲気中で1140～1150℃×40時間の均質化処理を施した。さらに、このインゴットをジョークラッシャにより平均粒径が10mm以下の粗粉碎物に粉碎した。この粗粉碎物に、次の条件の低温水素化工程、高温水素化工程、第1排気工程および第2排気工程とからなるd-HDDR処理を施した。すなわち、室温、水素圧力100kPaの水素ガス雰囲気下で、各試料合金へ十分に水素を吸収させた（低温水素化

工程)。次に、 800°C で 3.0 kPa （水素圧力）の水素ガス雰囲気下で、480分間の熱処理を施した（高温水素化工程）。引き続き、 800°C に保持したまま、水素圧力 $0.1\sim 2.0\text{ kPa}$ の水素ガス雰囲気下で、160分間の熱処理を施した（第1排気工程）。最後に、60分間、ロータリポンプおよび拡散ポンプで真空引きして、 10^{-1} Pa 以下の真空雰囲気下で冷却した（第2排気工程）。こうして、1バッチ当たり、各 10 kg 程度のNdFeB系異方性磁石粉末をそれぞれ作製した。なお、平均粒径は、ふるい分級後の各級の重量を測定し、おもみつき平均により求めた。これは、本明細書中の他の平均粒径についても同様である。

②界面活性剤の被覆

こうして得られた各組成からなるNdFeB系異方性磁石粉末に、界面活性剤の溶液を加えて、攪拌させながら真空乾燥させた（第1被覆工程）。界面活性剤の溶液は、チタネート系カップリング剤（味の素株式会社製、プレニアクトKR41B）をメチルエチルケトンで2倍に希釈したものである。こうして、界面活性剤で表面が被覆された粒子からなるNdFeB系粗粉末が得られた。但し、表1中の試料No. C1については、界面活性剤の被覆を行わなかった。

（2）SmFeN系微粉末の製造

市販のSmFeN系異方性磁石粉末（住友金属鉱山株式会社製）に、界面活性剤の溶液を加えて、攪拌させながら真空乾燥させた（第2被覆工程）。界面活性剤の溶液は、上記のものと同様である。こうして、界面活性剤で表面が被覆された粒子からなるSmFeN系微粉末が得られた。但し、表1中の試料No. C2については、界面活性剤の被覆を行わなかった。

なお、界面活性剤の被覆方法は、上述のNdFeB系粗粉末やSmFeN系微粉末について行った方法には限られない。例えば、NdFeB系粗粉末とSmFeN系微粉末をヘンシェルミキサー等で混合した後、界面活性剤の溶液を加えて攪拌させながら真空乾燥するという方法をとっても良い。

（3）コンパウンドの製造

上記NdFeB系粗粉末とSmFeN系微粉末とを表1に示した配合比（mass%）で、ヘンシェルミキサーによりそれぞれ混合した。その混合物に表1

に示した割合でエポキシ樹脂を加えて、バンバリーミキサーにより、110℃で加熱混練を行ってコンパウンドとした。この混練には、上記バンバリーミキサーの他、ニーダー等の混練機を使用しても良い。

なお、この加熱混練工程を行う温度は、そのエポキシ樹脂の軟化点以上、硬化点未満であれば良く、例えば、90～130℃の範囲で行える。エポキシ樹脂の場合、90℃未満では熔融状態とならず、SmFeN系微粉末を樹脂中に均一分散させることができない。一方、130℃以上ではエポキシ樹脂の硬化が進行するため、やはりSmFeN系微粉末を均一分散させることができない。なお、ここで均一に分散とは、SmFeN系微粉末とNdFeB系粗粉末との間にエポキシ樹脂が必ず存在している状態をいう。

この加熱混練温度の相違による影響を確認するために、加熱混練温度のみ変更して、表1に示した試料No. 1と同組成、同条件で製造し2種の比較例（試料No. H1、H2）を用意した。各加熱混練温度は表3に示した通りである。

（4）ボンド磁石の製造

得られた各種コンパウンドを1.2MA/mの磁場中で、成形温度150℃、成形圧力882MPaの条件の下で加圧成形した。これにより、7x7x7mmの立方体状の成形体を得た。

この成形体に、空芯コイルを用いて励磁電流10000Aを加えることにより着磁を行い（着磁工程）、ボンド磁石とした。なお、成形工程は、圧縮成形に限らず、射出成形、押し出し成形等も使用できる。

（試料の測定）

（1）表1および表3に示す各試料について、磁気特性、永久減磁率および相対密度をそれぞれ測定した。具体的には次の通である。

得られた各試料のボンド磁石の最大エネルギー積をBHトレーサー（理研電子販売株式会社製、BHU-25）で測定して求めた。

永久減磁率は、成形されたボンド磁石の初期磁束と、120℃の大気雰囲気中に1000時間保持した後に再着磁して得られた磁束との差から、その減少分の初期磁束に対する割合を求めたものである。この磁束の測定には、電子磁気株式会社製、MODEL FM-BIDSCを用いた。相対密度は、前述した方法で

求めた。

こうして得られた結果を表2および表3に示す。

(2) 表1の試料No. 1からなるボンド磁石について、SEM観察した写真を図4～6に示す。この写真は、島津製作所株式会社製、EPMA-1600を用いて撮影したものである。

図4は、2次電子像を示す。

図5は、Nd元素のEDAX像を示す。この図5中では、青→黄→赤の順でNd元素の濃度が濃くなっていることが示されており、大径粒子にNdが濃化していることから、その粒子がNdFeB系粉末粒子であることが解る。

図6は、Sm元素のEDAX像を示す。この図6中では、青→黄→赤の順でSm元素の濃度が濃くなっていることが示されている。この図6から、全ての大径粒子(NdFeB系粉末粒子)の周囲全面が、SmFeN系粉末粒子で覆いつくされていることと、NdFeB系粉末からなる大径粒子間に形成された隙間にSmFeN系粉末の小径粒子が均一にかつ密に分散していることが解る。

(評価)

表1～3から次のことが解る。

(1) 実施例について

試料No. 1～4のいずれの実施例も、本発明でいう平均粒径、配合比を備えたものである。その結果、 $(BH)_{max}$ は、いずれも 155 kJ/m^3 以上の高い磁気特性を示している。また、ボンド磁石の加熱成形時におけるコンパウンドの流動性を指標する相対密度は、いずれも94%以上という高密度である。さらに、このボンド磁石は、その経年劣化の指標となる永久減磁率がいずれも6%以下という優れた特性を示した。そして、相対密度(つまり、流動性)が向上する程永久減磁率(つまり、経年劣化特性)も向上しており、両者の間に関連があることが解る。

(2) 比較例について

①試料No. C1は、NdFeB系異方性磁石粉末に界面活性剤の被覆を施さなかった場合である。試料No. C2は、SmFeN系異方性磁石粉末に界面活性剤の被覆を施さなかった場合である。いずれの場合も、相対密度が低下しており

、流動性が低かったことが推測される。その結果、ボンド磁石の成形時に応力集中が十分に緩和されず、NdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子にマイクロクラックやそれに起因する割れが生じて、永久減磁率が低下したと考えられる。

特に、試料No. C1の場合、NdFeB系異方性磁石粉末の全面にSmFeN系微粉末が均一分散して強磁性流体層の硬化層が十分にとりまいて吸着した状態になかったために、加熱成形中に十分な流動性が得られず、永久減磁率が低下したと思われる。

また、試料No. C2の場合、NdFeB系粗粉末の全面に強磁性流体層の硬化層が十分にとりまいているものの、強磁性流体層内のSmFeN系異方性磁石粉末が偏在するために、加熱成形中に十分な流動性が得られず、永久減磁率が低下したと思われる。

②試料No. D1は、NdFeB系異方性磁石粉末の平均粒径が小さ過ぎた場合である。試料No. D2は、その平均粒径が大き過ぎた場合である。いずれの場合も、 $(BH)_{max}$ が大きく低下している。従って、経年劣化特性と磁気特性との向上を図るには、NdFeB系異方性磁石粉末の平均粒径が本発明の範囲内となる必要がある。

③試料No. E1は、NdFeB系粗粉末の配合量が少なかった場合である。試料No. E2は、NdFeB系粗粉末の配合量が多すぎた場合である。いずれの場合も、相対密度および経年劣化特性が低下している。特に、NdFeB系粗粉末の配合量が多いと、SmFeN系微粉末が少なくなり、加熱成形中で強磁性流体層内にSmFeN系微粉末の少ない場所ができて、局所的に強磁性流体層として機能しない部分ができたため、相対密度や経年劣化特性の低下が大きくなったと考えられる。

④試料No. F1は、SmFeN系微粉末の配合量が少なかった場合である。試料No. F2は、SmFeN系微粉末の配合量が多すぎた場合である。いずれの場合も、相対密度、経年劣化特性および $(BH)_{max}$ が低下している。特に、SmFeN系微粉末の配合量が少ないと、試料No. F2と同様の理由で相対密度や経年劣化特性の低下が大きくなったと考えられる。

⑤試料No. G1は、エポキシ樹脂の配合量が少なかった場合である。試料No.

G 2 は、エポキシ樹脂の配合量が多すぎた場合である。樹脂量が少ないと、強磁性流体層の形成が不十分となり、コンパウンドの流動性が失われて、相対密度および経年劣化特性が低下することが解る。一方、樹脂量が多いと、強磁性流体層が成形中に十分形成され、相対密度および経年劣化特性は良好なものの、磁石粉末の充填量が低下して、 $(BH)_{max}$ が大きく低下している。

以上のことから、磁気特性に優れ、経年劣化の少ないボンド磁石を得るためには、NdFeB系粗粉末とSmFeN系微粉末と樹脂とが、本発明でいう平均粒径や配合比を満たさなければならないことが確認された。

⑥試料No. H 1 は、加熱混練温度が低すぎた場合である。試料No. H 2 は加熱混練温度が高すぎた場合である。いずれの場合も、磁気特性自体は試料No. 1 の場合と大差がないものの、経年劣化特性は著しく低下している。試料No. H 1 のように加熱混練温度が低いと、樹脂の軟化が不十分となる。この為、その加熱混練時に、将来加熱成形されたときに強磁性流体層を形成する樹脂がNdFeB系粗粉末の全表面に十分に吸着されておらず、かつ、その樹脂の流動性が低いためにSmFeN系微粉末もその樹脂内へ十分に均一分散していない状態のコンパウンドしか形成できない。その結果、ボンド磁石の加熱成形に際して、良好な強磁性流体層が形成されない為、得られたボンド磁石の経年劣化特性が著しく低下する。

一方、試料No. H 2 のように加熱混練温度が高いと、樹脂の硬化が始り樹脂の流動性が低いため、試料No. H 1 の場合と同様な理由で良好な強磁性流体層を形成できない為、経年劣化特性が著しく低下する。

表1

試料 No.	Nd F e B系粗粉末										S m F e N系微粉末				エポキシ樹脂の配合比 (%)
	磁石粉末の組成 (a t %)										磁石粉末の組成 (a t %) 10Sm-77Fe-13N				
	Nd	Dy	B	Fe	Ga	Nb	Co	界面 活性剤	平均粒径 (μm)	配合比 (%)	界面 活性剤	平均粒径 (μm)	配合比 (%)		
実施例															
1	12.5		6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	106	78	有	3	20	2	
2	12.5	0.5	6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	150	76	有	3	22	2	
3	12.5		6.4	Bal.	0.3	0.2	3	有	106	75	有	3	23	2	
4	13.5	0.5	6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	75	77	有	3	21	2	
比較例															
C1	12.5		6.4	Bal.	0.3	0.2	—	無	106	78	有	3	20	2	
C2	12.5		6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	106	78	無	3	20	2	
D1	13.5	0.5	6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	45	78	有	3	20	2	
D2	13.5	0.5	6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	425	78	有	3	20	2	
E1	12.5		6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	106	45	有	3	53	2	
E2	12.5		6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	106	88	有	3	10	2	
F1	13.5	0.5	6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	106	86	有	3	12	2	
F2	13.5	0.5	6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	106	53	有	3	45	2	
G1	12.5		6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	106	78	有	3	20	0.5	
G2	12.5		6.4	Bal.	0.3	0.2	—	有	106	78	有	3	20	12	

表2

試料 No.	最大エネルギー積 (BH) max (kJ/m ³)	相対密度 (g/cc)	永久減磁率 (%)	NdFeB系粗粉末の 全表面における SmFeN系微粉末の 均一分散性	比較の観点
実施例	1	95	-4.0	有り	
	2	96	-4.5	有り	
	3	94	-5.1	有り	
	4	95	-4.8	有り	
比較例	C1	92	-8.6	無し (全面でない)	NdFeB系磁粉 界面活性剤無し
	C2	92	-9.5	無し (均一でない)	SmFeN系磁粉 界面活性剤無し
	D1	93	-7.5	有り	NdFeB系磁粉平均粒径 下限外れ
	D2	94	-6.0	有り	NdFeB系磁粉平均粒径 上限外れ
	E1	93	-7.4	有り	NdFeB系磁粉配合比 下限外れ
	E2	92	-8.2	無し (全面でない)	NdFeB系磁粉配合比 上限外れ
	F1	91	-9.0	無し (全面でない)	SmFeN系磁粉配合比 下限外れ
	F2	93	-7.0	有り	SmFeN系磁粉配合比 上限外れ
	G1	91	-12.1	有り	樹脂配合比 下限外れ
	G2	94	-5.0	有り	樹脂 配合比 上限外れ

表3

試料No.	加熱湿練温度 (°C)	最大エネルギー積 (BH) max (kJ/m ³)	相対密度 (g/cc)	永久減磁率 (%)	NdFeB系粗粉末の 全表面における SmFeN系微粉末の 均一分散性
実施例	1	184	95	-4.0	有り
比較例	H 1	182	91	-13.5	無し
	H 2	183	90	-16.0	無し

請求の範囲

1. ネオジウム (Nd) と鉄 (Fe) とホウ素 (B) とを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が $50 \sim 400 \mu\text{m}$ であるNdFeB系異方性磁石粉末と該NdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第1界面活性剤とからなるNdFeB系粗粉末を $50 \sim 84$ 質量% (mass%) と、

サマリウム (Sm) とFeと窒素 (N) とを主成分とする平均粒径が $1 \sim 10 \mu\text{m}$ であるSmFeN系異方性磁石粉末と該SmFeN系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第2界面活性剤とからなるSmFeN系微粉末を $15 \sim 40$ mass%と、

バインダである樹脂を $1 \sim 10$ mass%含有してなり、

該樹脂内に該SmFeN系微粉末が均一に分散してなる強磁性流体層の硬化層によって該NdFeB系粗粉末のほぼ全ての構成粒子が囲繞されていると共に該NdFeB系粗粉末の構成粒子間に形成された隙間が該強磁性流体層の硬化層によって密に充填されていることを特徴とする複合希土類異方性ボンド磁石。

2. ネオジウム (Nd) と鉄 (Fe) とホウ素 (B) とを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が $50 \sim 400 \mu\text{m}$ であるNdFeB系異方性磁石粉末と該NdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第1界面活性剤とからなるNdFeB系粗粉末を $50 \sim 84$ 質量% (mass%) と、

サマリウム (Sm) とFeと窒素 (N) とを主成分とする平均粒径が $1 \sim 10 \mu\text{m}$ であるSmFeN系異方性磁石粉末と該SmFeN系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第2界面活性剤とからなるSmFeN系微粉末を $15 \sim 40$ mass%と、

バインダである樹脂を $1 \sim 10$ mass%含有してなり、

120°C で 1000 時間経過後に再着磁して得られる磁束の減少割合を示す永久減磁率が 6% 以下であることを特徴とする複合希土類異方性ボンド磁石。

3. 最大エネルギー積 $(BH)_{max}$ が 155 kJ/m^3 以上である請求の範囲第1項または第2項に記載の複合希土類異方性ボンド磁石。

4. 相対密度が $94 \sim 99\%$ である請求の範囲第1項または第2項に記載の複合希土類異方性ボンド磁石。

5. NdとFeとBとを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が $50 \sim 400 \mu\text{m}$ であるNdFeB系異方性磁石粉末と該NdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第1界面活性剤とからなるNdFeB系粗粉末を $50 \sim 84$ 質量% (mass%) と、

SmとFeとNとを主成分とする平均粒径が $1 \sim 10 \mu\text{m}$ であるSmFeN系異方性磁石粉末と該SmFeN系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を被覆する第2界面活性剤とからなるSmFeN系微粉末を $15 \sim 40$ mass% と、

バインダである樹脂を $1 \sim 10$ mass% 含有してなり、

該NdFeB系粗粉末のほぼ全ての構成粒子の表面が、該樹脂内に該SmFeN系微粉末が均一に分散してなり将来加熱成形されたときに強磁性流体層となる樹脂層で被覆されていることを特徴とする複合希土類異方性ボンド磁石用コンパウンド。

6. 成形温度 150°C 、磁場 1.2 MA/m 、成形圧力 882 MPa の条件下で加熱磁場成形した際に得られるボンド磁石の相対密度が $94 \sim 99\%$ となる請求の範囲第7項に記載の複合希土類異方性ボンド磁石用コンパウンド。

7. NdとFeとBとを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が $50 \sim 400 \mu\text{m}$ であるNdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を第1界面活性剤で被覆してなるNdFeB系粗粉末を $50 \sim 84$ mass% と、SmとFeとNとを主成分とする平均粒径が $1 \sim 10 \mu\text{m}$ であるSmFeN系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を第2界面活性剤で被覆してなるS

mFeN系微粉末を15～40mass%と、バインダである樹脂を1～10mass%とを混合する混合工程と、

該混合工程後に得られた混合物を該樹脂の軟化点以上の温度に加熱して混練する加熱混練工程とからなり、

該加熱混練工程中で、該NdFeB系粗粉末のほぼ全ての構成粒子の表面が、該樹脂内に該SmFeN系微粉末が均一に分散してなり将来加熱成形されたときに強磁性流体層となる樹脂層で被覆されたコンパウンドが形成されることを特徴とする複合希土類異方性ボンド磁石用コンパウンドの製造方法。

8. NdとFeとBとを主成分とするNdFeB系合金に水素化処理を施して得られた平均粒径が50～400 μ mであるNdFeB系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を第1界面活性剤で被覆してなるNdFeB系粗粉末を50～84mass%と、SmとFeとNとを主成分とする平均粒径が1～10 μ mであるSmFeN系異方性磁石粉末の構成粒子の表面を第2界面活性剤で被覆してなるSmFeN系微粉末を15～40mass%と、バインダである樹脂を1～10mass%とからなるコンパウンドを該樹脂の軟化点以上の温度に加熱して磁場中で成形し、

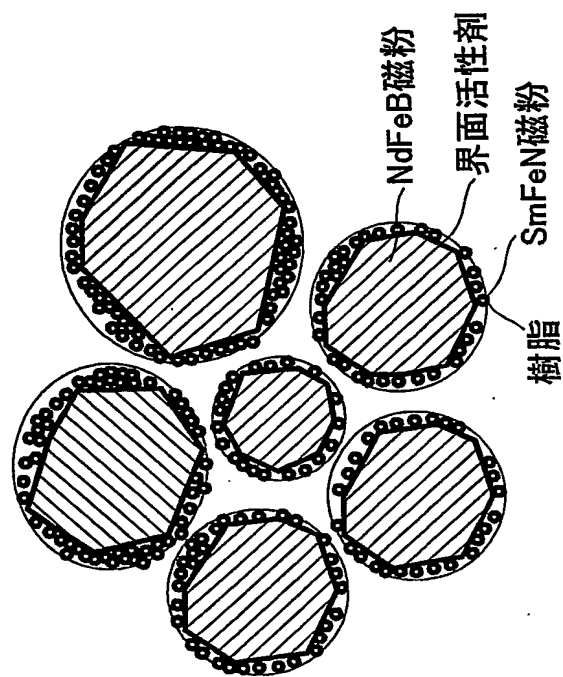
該加熱磁場成形中で、該樹脂内に該SmFeN系微粉末が均一に分散して形成された強磁性流体層によって該NdFeB系粗粉末のほぼ全ての構成粒子が囲繞されていると共に該NdFeB系粗粉末の構成粒子間に形成された隙間が密に充填された状態となった後に、該強磁性流体層が硬化してボンド磁石が形成されることを特徴とする複合希土類異方性ボンド磁石の製造方法。

要約書

本発明のボンド磁石は、平均粒径および配合比が特定された、界面活性剤で表面被覆されたNdFeB系粗粉末と、界面活性剤で表面被覆されたSmFeN系微粉末とバインダである樹脂とで構成されてなる。

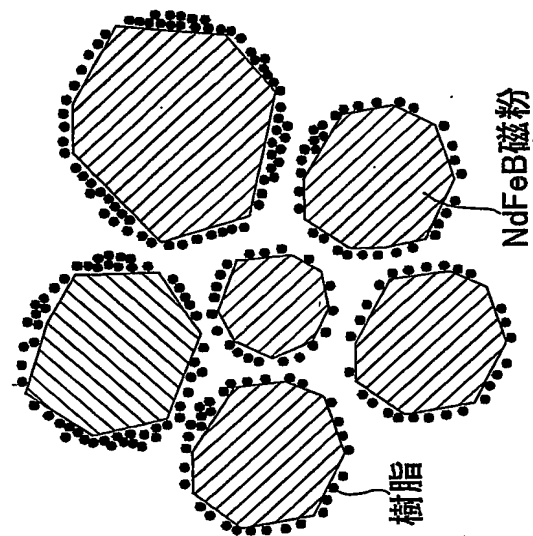
樹脂内にSmFeN系微粉末が均一に分散してなる強磁性流体層が、NdFeB系粗粉末のほぼ全ての構成粒子を囲繞し、NdFeB系粗粉末の構成粒子間に形成された隙間を密に充填することによって、磁気特性に優れると共に経年劣化が非常に少ないボンド磁石が得られた。

図1A



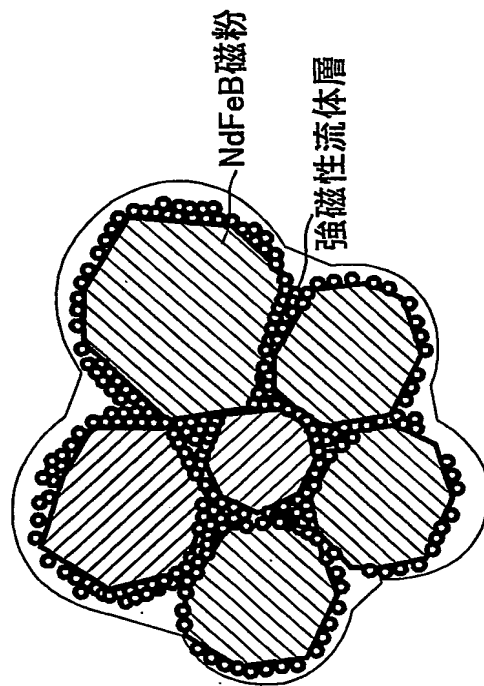
本発明のコンパウンド

図1B



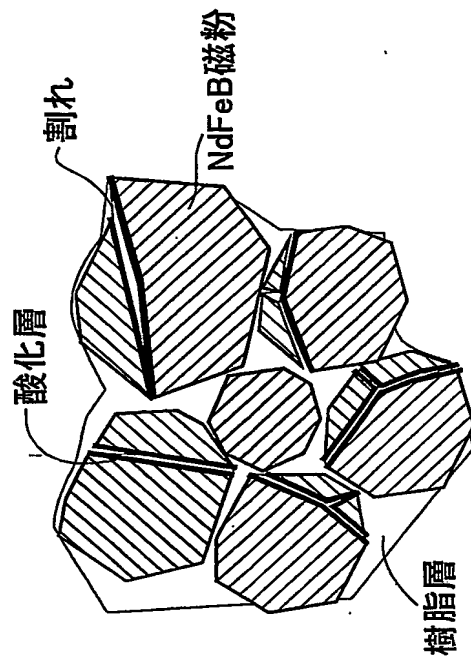
従来のコンパウンド

図2A



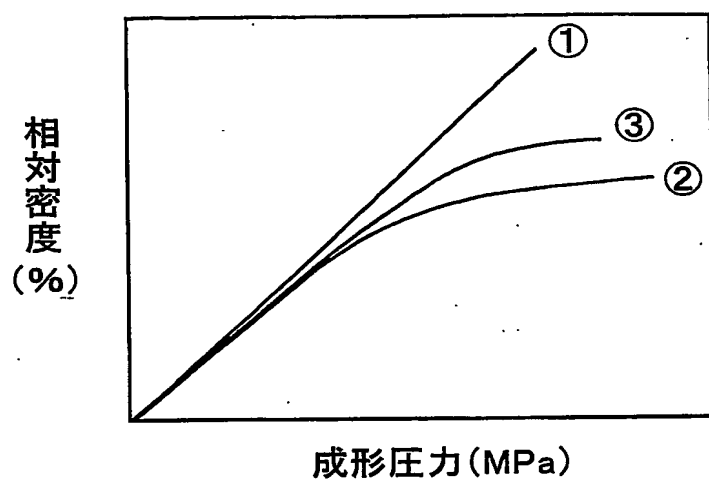
本発明のボンド磁石

図2B



従来のボンド磁石

图3



4

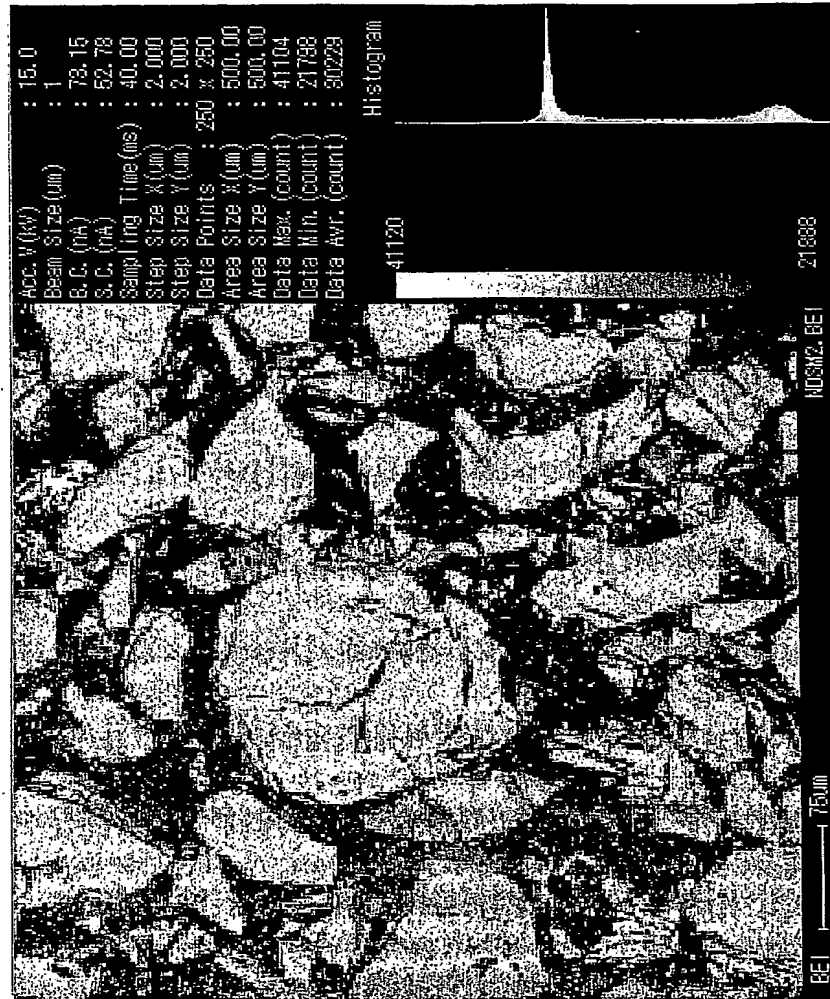
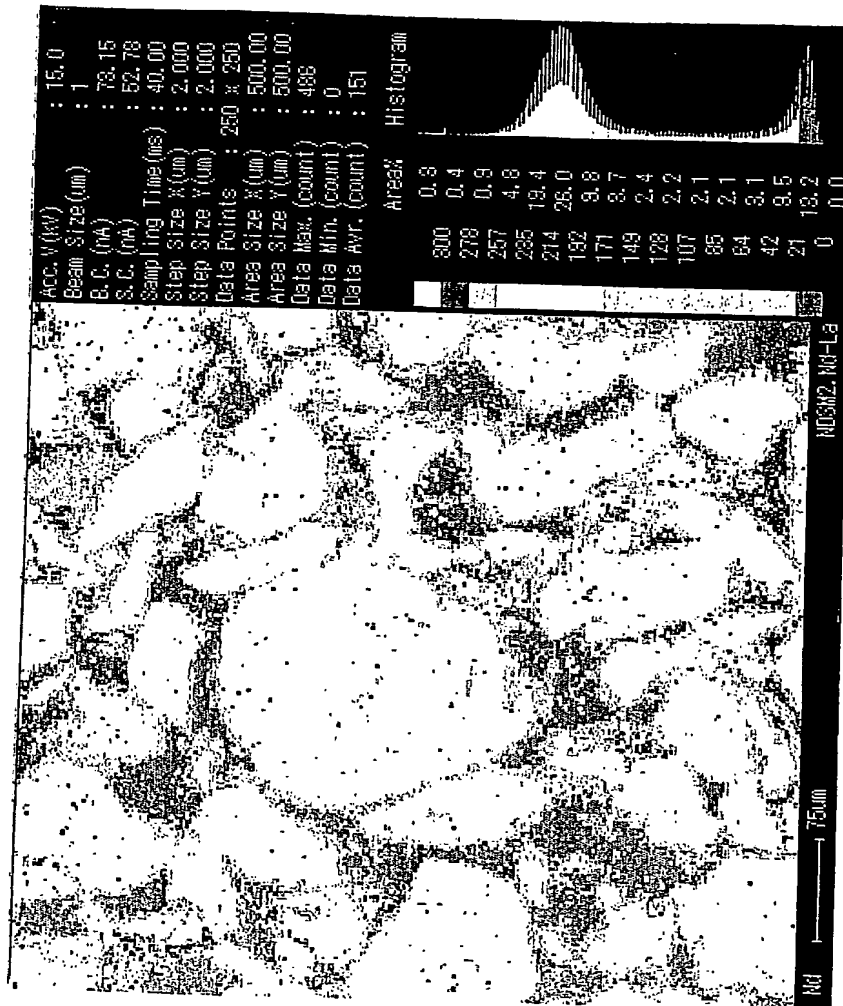


图 4



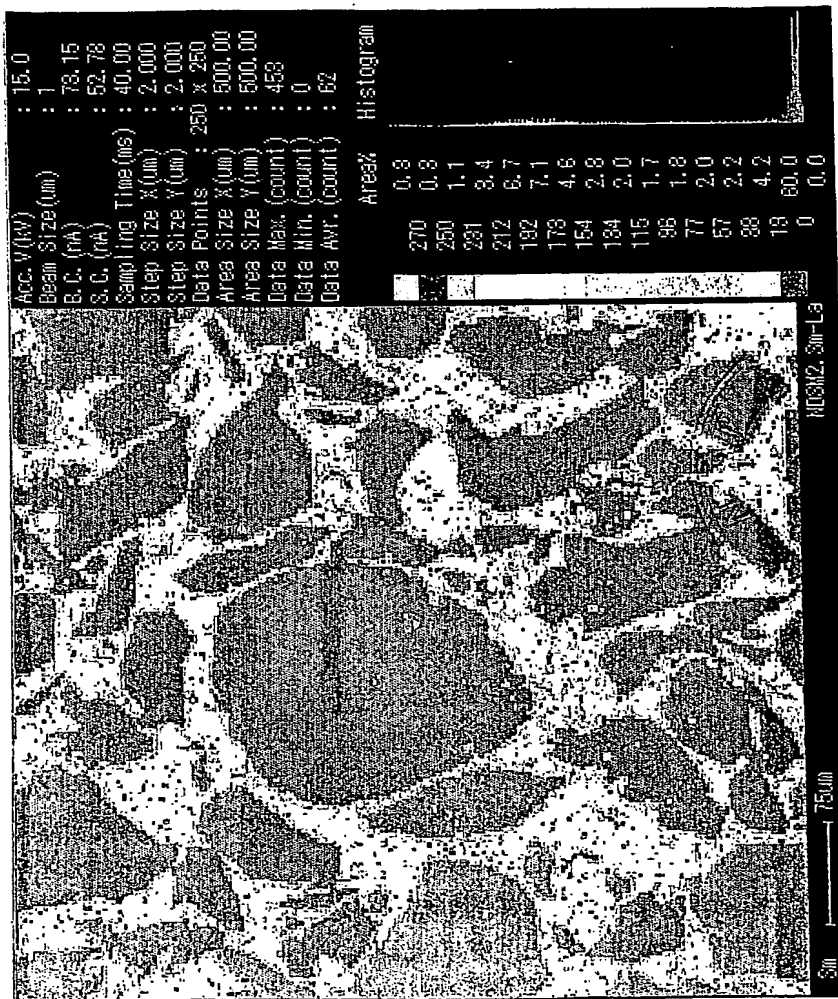
図 5



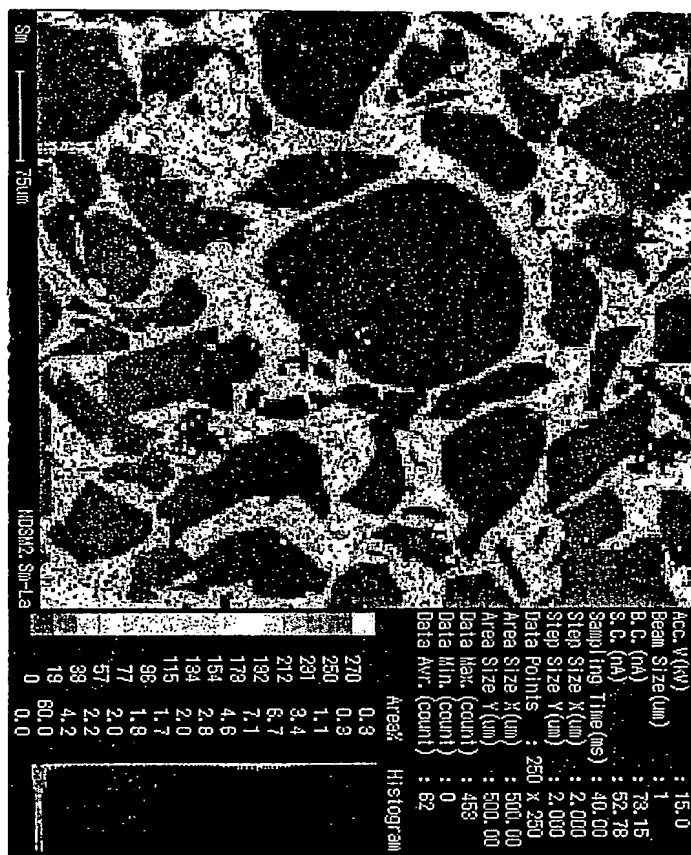
5



図 6



6



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.